

## ATOMIZACION DE METALES Y ALEACIONES POR TECNICA DE ELECTRODO ROTATORIO

**L. Olivares, J. Marin, J. Lisboa, M. Barrera, C. Marchant, y J. Espinoza (1)**

Departamento Materiales Nucleares, Comisión Chilena de Energía Nuclear, CHILE.

(1) Memorista Departamento de Ingeniería Metalúrgica, Universidad de Santiago de Chile,

E-mail: [lolivare@cchen.cl](mailto:lolivare@cchen.cl)

### RESUMEN

*Los metales o aleaciones que admiten grados importantes de deformación plástica antes de llegar a la fractura representan un complejo desafío al momento de requerir ser convertidos en sistemas particulados. Mientras que en los materiales frágiles basta la utilización de metodologías convencionales de molienda mecánica para provocar su fragmentación y transformación en polvos, los materiales dúctiles requieren la aplicación de técnicas alternativas, con frecuencia asociadas a una no despreciable cantidad de energía, que afecta finalmente la eficiencia y aplicabilidad de estas técnicas mas allá de pruebas a nivel laboratorio. Este trabajo reporta los primeros resultados de un sistema de atomización centrífuga que permite obtener polvos a partir de un arco eléctrico producido entre un electrodo de tungsteno y un pin o cilindro fabricado del material de interés, que constituye el electrodo rotatorio y que al momento de producir el arco, se encuentra girando a gran velocidad (30000 – 40000 RPM). Esta fusión incipiente, seguida inmediatamente por una rápida proyección y solidificación de la fracción fundida produce gotas que viajan a gran velocidad hasta impactar, ya en estado sólido, las frías paredes de un contenedor cilíndrico de acero inoxidable. En un sistema construido en la CCHEN para funcionar dentro de una caja de guantes y bajo atmósfera inerte, el proceso de atomización demora del orden de 30 segundos para el caso de electrodos o pins de 30 g aproximadamente, de los cuales dos tercios se convierten en un sistema particulado, mientras que el resto del material queda en el porta pin y puede ser recuperado o reprocesado. La corriente aplicada por el electrodo de tungsteno es del orden de 80 - 120 amperes y los polvos producidos a partir de esta metodología presentan morfología esférica o muy próxima a ella, con distribución de tamaños de 50 a 300  $\mu\text{m}$ , dependiendo de la velocidad de rotación. Este sistema fue desarrollado y construido con el propósito de producir polvos de aleaciones uranio-molibdeno para su uso en combustibles nucleares de alta densidad para reactores de investigación. No obstante, pruebas preliminares han demostrado su aplicabilidad a materiales convencionales tan variados como aluminio, cobre y sus aleaciones y acero inoxidable, produciendo en cada caso interesantes sistemas particulados basados en morfologías esféricas producto de solidificación rápida en atmósfera inerte.*

### Tópico 2: Materiales Metálicos

**Palabras clave:** (Pulvimetalurgia, Atomización, Electrodo, Rotatorio).

### 1. INTRODUCCIÓN

La fabricación de combustibles para reactores nucleares, aplicados principalmente en investigación, análisis por activación neutrónica y producción de radioisótopos para la industria y la medicina nuclear, se basan en procesos propios de la metalurgia de polvos. El núcleo de los reactores chilenos

está constituido por un arreglo simétrico de elementos combustibles compuestos a su vez por placas planas en las cuales una distribución homogénea de un material físil es dispersa en una matriz inerte, usualmente de aluminio y todo el conjunto está confinando herméticamente en un revestimiento o cladding de aluminio. El material físil o combustible consiste, por lo general, en un compuesto intermetálico o aleación de uranio enriquecido en el isótopo U-235. Por razones de seguridad, el tema del enriquecimiento ha sido cuestionado desde la década de los 70, concluyéndose que, para evitar la proliferación de armas nucleares basadas en uranio altamente enriquecido, los combustibles nucleares debían ser fabricados con uranio enriquecido por debajo de 20% [1]. Originalmente los materiales combustibles permitían obtener densidades de uranio entre 1,3 – 1,7 gU/cm<sup>3</sup> y desde 1978 un Programa Internacional de Bajada de Enriquecimiento (RERTR) promovió el uso de compuestos de alta densidad del tipo siliciuros para reemplazar al UAlx o U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> [2], pudiendo entonces alcanzar densidades de hasta 6,1 gU/cm<sup>3</sup>, siendo licenciado internacionalmente un valor de 4,8 gU/cm<sup>3</sup> [3].

Utilizando combustibles basados en siliciuros de uranio se logró la conversión de casi la totalidad de los reactores del mundo, incluido el reactor chileno RECH-1, sin embargo para un número importante de reactores de alto flujo se requiere otro tipo de combustible que permita densidades por sobre el límite de 4,8 gU/cm. En 1996 el programa RERTR recomendó el desarrollo de combustibles en base a aleaciones de uranio con estructura cúbica (fase gamma) [2]. En este contexto un grupo de menos de 10 países, entre los que se encuentra Chile, se han propuesto calificar combustible tipo disperso basado en aleaciones U-Mo hasta densidades de 8 gU/cm<sup>3</sup>, aleaciones que al mismo tiempo facilitarían el tratamiento y recuperación del uranio desde los combustibles gastados [3].

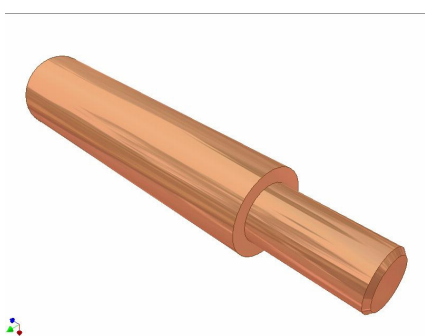
Estas aleaciones U-Mo presentan mayoritariamente fase cúbica metaestable y han demostrado un comportamiento bajo irradiación excepcionalmente homogéneo. Con todo, una característica de este nuevo tipo de material combustible es su tenacidad - UTS sobre 90 kg/mm<sup>2</sup> - 883 Mpa para U7Mo [4] lo cual, comparado con la fragilidad de los siliciuros - dureza de 392 HV y alargamiento menor a 1% para U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub> [2], limita la eficiencia de las técnicas convencionales de conminución para fabricación de polvos. En la CCHEN, desde el 2004, se han probado diversos métodos tales como: esmerilado de lingotes, molienda criogénica de virutas, molienda con cuchillos rotatorios, además de procesos de hidruración-deshidruración y cuyos resultados han sido hasta ahora parcialmente satisfactorios [5]. La metodología más reciente introducida en la Planta de Combustibles de la CCHEN para la obtención de polvos es la atomización centrifuga por electrodo rotatorio, sistema que permite producir polvos metálicos a partir de un cilindro o pin de metal el cual es fundido mientras gira sobre su eje longitudinal. El metal fundido es proyectado centrifugamente y forma gotas que solidifican y se convierten en partículas esféricas de polvo. El diseño conceptual de REP (rotative electrode process) fue patentado en Estados Unidos por Starmet Corporation (inicialmente Nuclear Metals, Inc.) [6]. El proceso de electrodo rotatorio posee características inherentes que lo hacen ser el único que permite la fabricación de polvos de cierto tipo de aleaciones. Por tratarse de un proceso que no utiliza crisol, permite un alto nivel de limpieza, una característica crítica para aleaciones reactivas o de alta temperatura que son agresivamente corrosivas en estado líquido y que atacan los crisoles cerámicos convencionales [7]. Las aleaciones base titanio, circonio, molibdeno y vanadio son industrialmente atomizadas por REP con mínima contaminación. Por otra parte, con velocidades de solidificación del orden de 10<sup>3</sup> a 10<sup>4</sup> °C/seg [7] inferiores a atomización en gas o en agua, los polvos REP son casi perfectamente esféricos, con superficie suave y de gran calidad y prácticamente libres de defecto de coalescencia (satélite) debido a que las gotas atomizadas se dispersan y mueven radialmente alejándose unas de otras minimizando la probabilidad de colisiones entre gotas líquidas y partículas sólidas y la consecuente coalescencia de dos o más cuerpos en formas irregulares [8]. La naturaleza individual de las partículas esféricas resultantes generan polvos de gran fluidez y alta densidad de empaquetamiento, aproximadamente 65% en volumen.

Los polvos REP presentan la más estrecha distribución de tamaños, con rangos que van entre 50 a 400  $\mu\text{m}$  y tamaño promedio de 200  $\mu\text{m}$ , mayor que el tamaño medio de los polvos producidos por atomización en gas. Debido a que la atomización REP es producida por fuerzas centrífugas más que por arrastre aerodinámico, el polvo es esencialmente libre de porosidad comparado con polvos atomizados en gas [8]. Sin embargo los antecedentes bibliográficos también revelan algunas limitaciones mecánicas para la velocidad de rotación, lo cual limita el tamaño medio [8] de las partículas, además del considerable costo asociado al mecanizado de los pines. La productividad del proceso es limitada y el consumo de energía es alto comparado con otras técnicas. En cuanto a las variables del proceso, la velocidad angular es ampliamente aceptada como la principal para determinar las características de distribución de tamaño y morfología de los polvos producidos [9,10], sin embargo otras propiedades tales como calidad superficial y porosidad residual son también influidas por características propias del material, como su densidad, tensión superficial, temperatura de fusión, viscosidad del líquido y las dimensiones de los pines. Parámetros inherentes al proceso como el tipo y presión de la atmósfera gaseosa, tipo de corriente AC/DC, magnitud de corriente y voltaje, también influyen en las características finales de los polvos producidos.

La fase de implementación y caracterización de esta técnica en la CCHEN consideró desde el diseño del contenedor de acero inoxidable, cuyas dimensiones están determinadas por la trayectoria y distancia de solidificación de las gotas más grandes, hasta un sistema de control y operación del sistema bajo atmósfera controlada. Las pruebas de funcionamiento y ensayos preliminares del equipo se hicieron con materiales convencionales tales como acero inoxidable, cobre y bronce laminado para, en una etapa posterior, aplicar esta metodología a fabricación de polvos de aleaciones U-Mo. Este trabajo presenta y discute resultados de funcionamiento del sistema y caracterización de polvos obtenidos con acero inoxidable, cobre y bronce.

## 2. PROCEDIMIENTO EXPERIMENTAL

Las pruebas de caracterización del equipamiento fueron hechas con pines fabricados a partir de barras laminadas de bronce, cobre y acero inoxidable AISI 304 de calidad comercial.



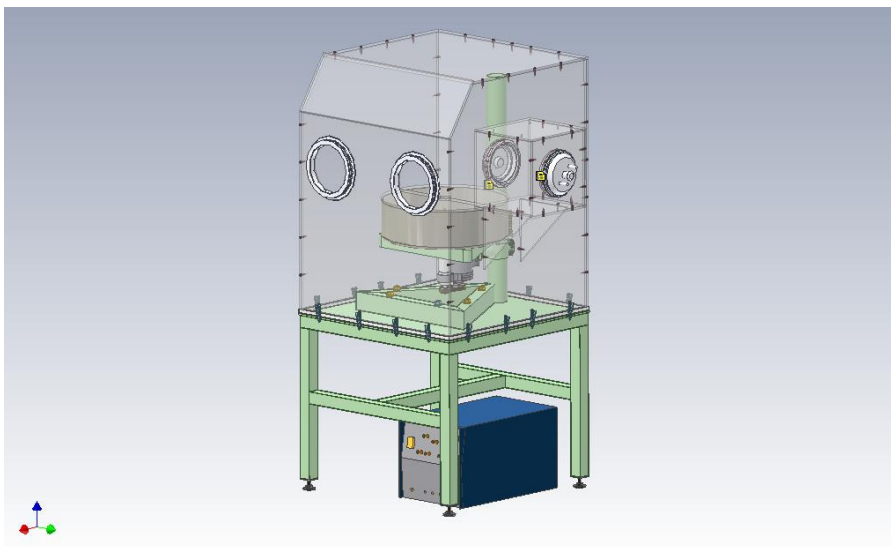
Los pines de prueba tenían aproximadamente 50 mm de largo con 9,5 mm de diámetro mayor, tal como se muestra en la figura 1.

La microestructura de las materias primas fue analizada mediante metalografía óptica y antes de cada prueba se registró el peso y medidas de cada uno de los pines.

**Figura 1.** Pin o electrodo consumible para producir polvos por atomización centrífuga

El sistema rotatorio fue construido con el motor de una rectificadora de torno Marca Themac, modelo J-35 la cual, según especificaciones, puede alcanzar una velocidad angular máxima de 45.000 rpm. La cámara cilíndrica de atomización es de acero inoxidable conformado con 50 cm de diámetro y 18 cm de altura cubierto por una tapa de acrílico transparente. Para producción de polvos de UMo se confinará todo el sistema dentro de una caja de guantes, tanto por las características pirofóricas del polvo de UMo como por medidas de protección radiológica. No obstante, para pruebas con materiales convencionales reportadas en este trabajo, no ha sido

necesaria la utilización de dicha cámara protectora. Por su parte, para generar el arco eléctrico y fundir el electrodo rotatorio se emplea una máquina soldadora MERSUD 2000 TIG HF AC/DC con pistola TIG con pulsador de 200 Amperes. El pin constituye el ánodo de un circuito eléctrico que cierra un cátodo de tungsteno de 5/32". La aplicación del torch se realizó bajo atmósfera inerte aportada por un flujo de argón una vez que el electrodo rotatorio había alcanzado la velocidad angular requerida. La variación de la velocidad angular se logró alimentando el motor de 150 VAC a través de un transformador variable o variac.



**Figura 2.** Esquema del atomizador por electrodo rotatorio

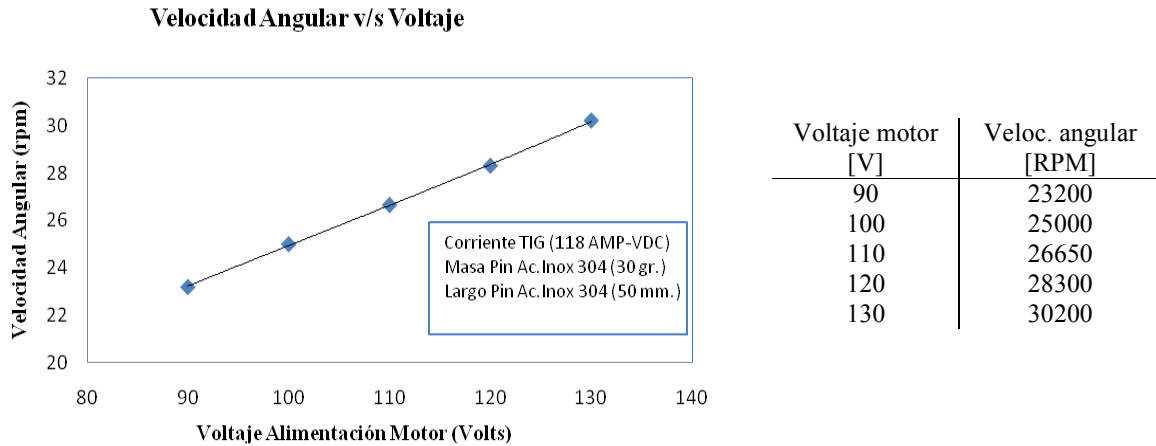
Para los experimentos de atomización se tomó como variable principal la velocidad angular del electrodo en función del voltaje de alimentación del motor. Para las pruebas iniciales se fijaron diversos parámetros: Corriente y voltaje soldadora: 118 A / 100V; Flujo de argón: 28 l/min; Diámetro boquilla: 8 mm; Diámetro del Tungsteno: 1/32". Los polvos producidos bajo estas condiciones fueron caracterizados en cuanto a distribución y tamaño de partículas mediante tamizado. Para la medición de la velocidad angular se utilizó un tacómetro digital Photo Tachometer (Extech 461893), rango de medición 0,1 – 99.999 rpm y el análisis metalográfico permitió comparar los tamaños de grano entre los polvos producidos y la materia prima (pines).

Para la caracterización de tamaño de partículas se utilizaron tamices Tyler de 150, 125, 90 y 63  $\mu\text{m}$ . Las muestras de polvos resultantes de los distintos voltajes se clasificaron en el juego de tamices para lo cual se utilizó un Ro- Tap para polvos (EML N° 7572). El tiempo de tamizado se estableció en 5 minutos para lograr una buena clasificación de las partículas.

### 3. RESULTADOS Y DISCUSIÓN

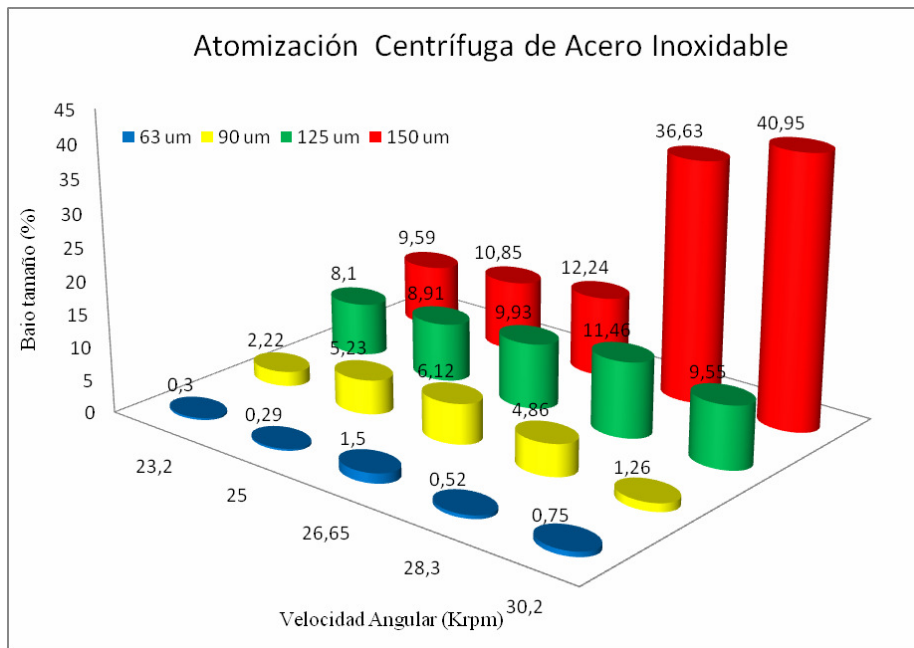
El gráfico de la figura 3 muestra la variación de la velocidad angular respecto del voltaje de alimentación del motor. Se destaca la respuesta prácticamente lineal del motor el cual, que sin embargo, no alcanza la velocidad especificada por el fabricante, probablemente debido a la carga constituida por el mandril y el pin de acero y probablemente debido a la diferente frecuencia de la red de corriente alterna (50 Hz en Chile v/s 60 Hz en EEUU).

En cuanto a funcionamiento del sistema, se verificó su capacidad para transformar los pines de aproximadamente 30 g en alrededor de 20 g de polvos para acero inoxidable, permaneciendo el resto del material sujeto al mandril de 1/4". Esta transformación ocurrió en 30 - 40 segundos.



**Figura 3.** Velocidad angular del pin rotatorio en función del voltaje de alimentación del motor

Una vez completada la atomización del set de pines, la clasificación en tamices reveló la distribución de tamaño de partículas resumida en el gráfico de la figura 4. Se muestran los porcentajes obtenidos bajo cada tamiz (150-63 micrones) en función de la velocidad angular.



**Figura 4.** Diferentes rangos de tamaño de partícula, en [%] en función de la velocidad angular.

Del gráfico de la figura 4 se puede deducir que mientras mayor sea el voltaje aplicado al motor, menor es la cantidad de partículas gruesas (>150µm) que se producen y también que, por sobre cierta velocidad angular (~ 28000 rpm), el incremento es menos significativo, se llega entonces a un límite de disminución de tamaño y sobre el cual esta variable deja de tener efecto importante. Con

el aumento de la velocidad angular se produce más material bajo 150  $\mu\text{m}$ , pero no ocurre lo mismo en los tamaños más finos, cuyos porcentajes se mantienen estables.

La figura 5 muestra una comparación entre polvos producidos bajo las mismas condiciones para diferentes materiales. Los polvos más finos se obtienen para bronce, seguido por el cobre y finalmente el acero inoxidable, de cuyos polvos menos del 40% están bajo 150  $\mu\text{m}$ . Probablemente las diferencias estén determinadas por propiedades del material como la temperatura de fusión, tensión superficial, viscosidad y densidad del líquido.

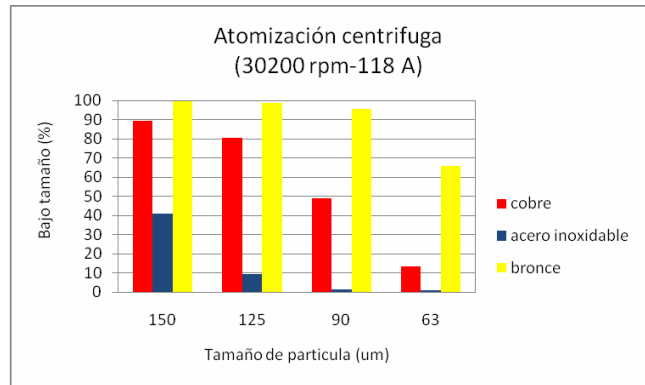


Figura 5. Influencia del tipo de material

El análisis metalográfico de las muestras de acero inoxidable 304 antes y después de la atomización reveló en las partículas esféricas de polvo atomizado una microestructura fina, homogénea, sin evidencias de segregación y con granos equiaxiales, produciéndose además un significativo afinamiento de grano de al menos un 50% de la microestructura original.

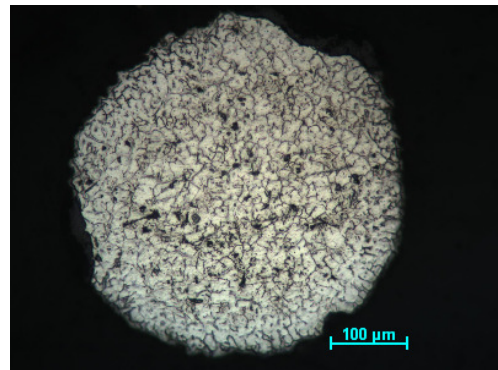
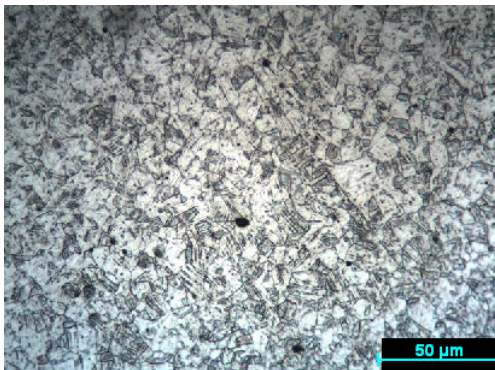


Figura 6. Microscopía óptica de acero inoxidable 304: (izquierda) microestructura original antes de atomizar y (derecha), corte de una partícula esférica después de atomización centrífuga.

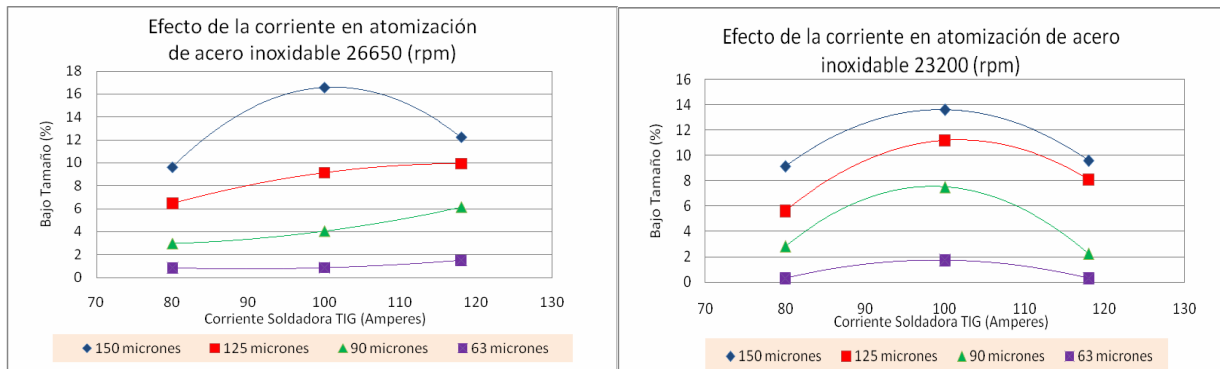
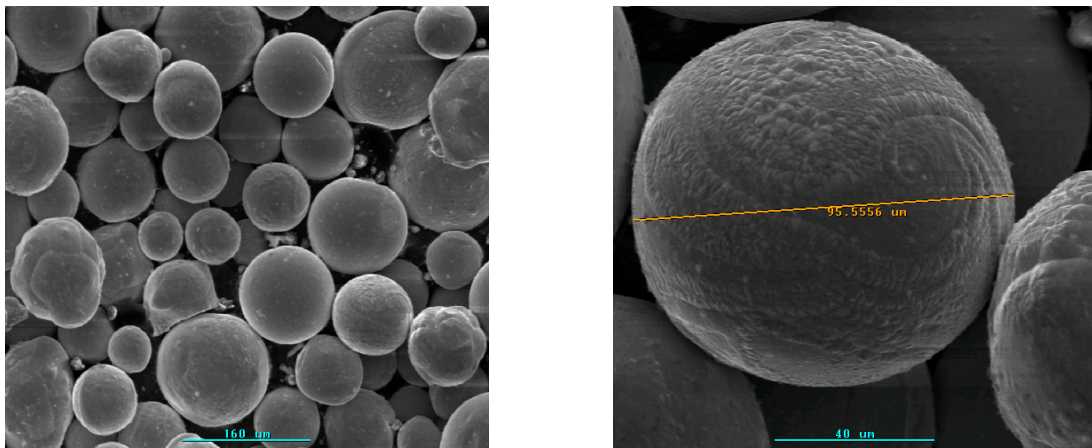


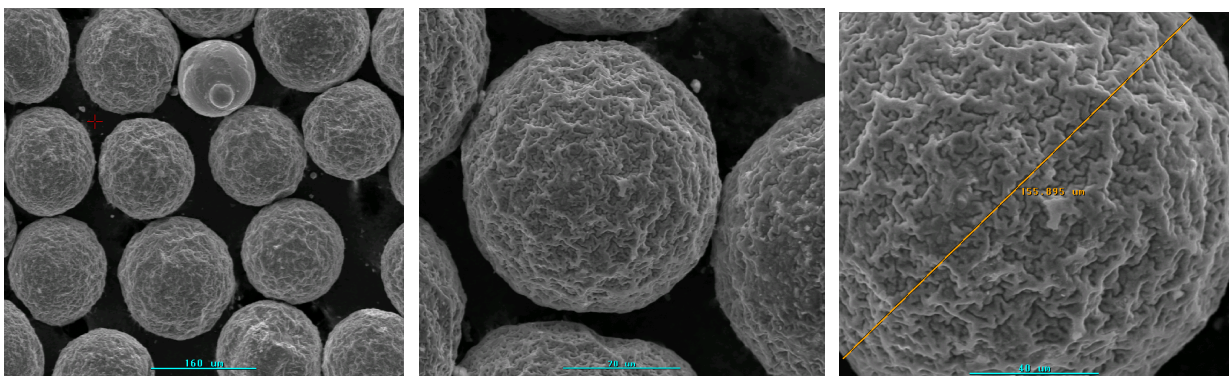
Figura 7. Influencia de la corriente de la máquina TIG sobre el material bajo tamaño considerando dos valores de velocidad angular.

Al subir la corriente de la soldadora TIG aumentan los porcentajes de material bajo todos los rangos de tamaño, siendo más evidente en los rangos de tamaño mayores, sin embargo al continuar aumentando la corriente se observa disminución en todos los rangos de tamaño, especialmente con la velocidad angular mayor. Al aumentar la corriente de la soldadora se incrementa la temperatura del líquido, lo que disminuye los valores de tensión superficial pero también de la viscosidad del líquido, provocando en principio la disminución de tamaño de las partículas atomizadas. Sin embargo, seguir aumentando la corriente favorece también la formación de óxidos superficiales en las partículas con lo cual revierte el efecto inicial. Esto podría explicar las tendencias observadas.

En cuanto a microscopía electrónica de barrido, en las partículas de las figuras 8 y 9 predomina la morfología esférica, presentando las partículas de inoxidable indicios de solidificación dendrítica y superficie más rugosa que la producida en el cobre, con tamaños más homogéneos y con tendencia hacia diámetros mayores (menor cantidad de partículas finas)



**Figura 8.** Micrografías MEB de polvos de cobre producidos por atomización centrífuga.



**Figura 9.** Micrografías MEB. Atomización centrífuga de acero inoxidable 304

#### 4. CONCLUSIONES

Los resultados de las pruebas preliminares demuestran la capacidad del sistema para producir polvos a partir de pines cilíndricos de materiales convencionales.

Bajo las condiciones de trabajo del sistema construido en la CCHEN, la velocidad angular del sistema resultó ser menor que la especificada por el fabricante del motor.

En los polvos producidos predomina la morfología esférica, con rango de tamaños de partícula entre 50 y 300  $\mu\text{m}$ . La superficie es fina y la alta velocidad de solidificación aporta cierto nivel de rugosidad superficial. El análisis metalográfico revela ausencia de porosidad interna de las partículas.

La principal variable para determinar el tamaño, distribución y morfología de las partículas es la velocidad angular, determinada a su vez por el voltaje de alimentación del motor. Otras variables de importancia para el proceso son la corriente de la fuente de alimentación (soldadora TIG), el flujo de gas inerte y el peso y geometría de los pines.

#### 5. REFERENCIAS

1. Ian Hore-Lacy; World Nuclear Association; "Research Reactors" in Encyclopedia of Earth, Última Revisión, Diciembre 2009 [http://www.eoearth.org/article/Research\\_reactors](http://www.eoearth.org/article/Research_reactors) (webpage)
2. Chang Kyu Kim\*, Jong Man Park and Ho Jin Ryu; "Use of a Centrifugal Atomization Process in the Development of Research Reactor Fuel"; Nuclear Engineering and Technology, Vol.39 N°.5 October 2007, páginas 617 – 620 (paper)
3. J. L. Snelgrove, A. Languille "Qualification of uranium – molybdenum alloy fuel conclusions of an international workshop"; Argonne National Laboratory, Chicago, EEUU, Enero 2000.
4. J. Marin, J. Lisboa, J. Ureta, L. Olivares, H. Contreras, H. Contreras, J.C. Chavez; "Synthesis and clad interaction study of  $\text{U}_3\text{Si}_2$  powders dispersed in an aluminum matrix", Journal of Nuclear Materials, Volumen 228, 1996, páginas 61 – 67 (revista)
5. Jorge Marin, Jaime Lisboa, Luis Olivares, Mario Barreea; "Estado actual del desarrollo de combustibles para reactores de investigación en Chile"; 8° Congreso Internacional de Metalurgia y Materiales CONAMET/SAM 2008, Santiago, 28-31 octubre 2008. (paper)
6. U.S. Patent 3,099,041, July, 1963., U.S. Patent 3,802,816, April, 1974 (patentes)
7. C. L. Tribus, J. D. Verhoeven, F. A. Schmidt and W. A. Spitzig "Use of the rotating - electrode process in the fabrication of Cu-Nb Composites"; Journal of Materials Science Letters , Vol. 7 (1988), p. 532-534 (revista)
8. Steven A. Miller, Starmet Corporation, and Peter R. Roberts, American Superconductor From: ASM Metals Handbook, Volumen 7, Powder Metal Technologies and Applications (ASM International), Publicado 1990, páginas: 97-101 (libro)
9. Handbook of Non- Ferrous Metal Powders – Technologies and Applications, Editado por Oleg D. Neikov, Stanislav S. Naboichenko, Goron Dovson, Elsevier Ltd., 2009 (libro)
10. C. R. Clark, B. R. Muntifering, J. F. Jue, M. D. Chapple; Production and Characterization of , Atomized U-Mo Powder by The Rotating Electrode Process. RERTR International Meeting, Septiembre 23-27, 2007. Praga, República Checa (paper)